

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number : 64-009214

(43) Date of publication of application : 12.01.1989

(51) Int.Cl. C08G 59/32  
C09K 3/10  
H01L 23/30

(21) Application number : 62-162986

(71) Applicant : UBE IND LTD

(22) Date of filing : 30.06.1987

(72) Inventor : ENDO SHIGERU

FUNAKOSHI TSUTOMU

NAKAMURA TAKAHITO

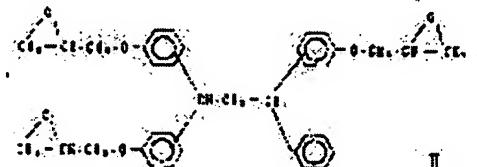
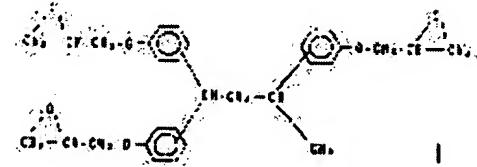
MIWA YOSHIYUKI

## (54) EPOXY RESIN COMPOSITION FOR SEALING SEMICONDUCTOR

### (57) Abstract:

PURPOSE: To obtain the title resin compsn. having a high glass transition point and a low elasticity or flexibility, by mixing a trifunctional epoxy resin, a phenol resin curing agent, a cure accelerator, an inorg. filler and a specified organopolysiloxane.

CONSTITUTION: The object epoxy resin compsn. for sealing semiconductors is obtd. by mixing a trifunctional epoxy resin A (e.g., formulas I and II), a phenol resin curing agent B, a cure accelerator C (e.g., 2-ethyl-4-methylimidazole), an inorg. filler D (e.g., silica or alumina) and an organopolysiloxane E having at least one member of the epoxy, carboxyl, hydroxyl, cyano and polyoxyalkylene groups in its molecule. Examples of the component E include epoxy polyether-modified silicone oil and carboxyl-modified silicone oil.



### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

DERWENT-ACC-NO: 1989-057316

DERWENT-WEEK: 198908

COPYRIGHT 2006 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Epoxy! resin compsn. for sealing semiconductors contg. tri:functional epoxy! resin, phenol! resin curing agent, accelerators and organo:polysiloxane

PATENT-ASSIGNEE: UBE IND LTD[UBEI]

PRIORITY-DATA: 1987JP-0162986 (June 30, 1987)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	MAIN IPC
<u>JP 01009214 A</u>	January 12, 1989	N/A	006	N/A

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
JP 01009214A	N/A	1987JP0162986	June 30, 1987

INT-CL (IPC): C08G059/32, C09K03/10, H01L023/30

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 01009214A

BASIC-ABSTRACT:

Epoxy resin compsns. comprise (a) trifunctional epoxy resin, (b) phenol resin as a curing agent, (c) accelerators and (d) organopolysiloxane contg. gps. selected from epoxy, COOH, OH or polyoxyalkylene.

Pref. epoxy resin (a) includes resins of the formula AC(A)HCH<sub>2</sub>C(R')-A (A is of formula (i) R' is CH<sub>3</sub> or C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>; R<sub>2</sub> and R<sub>3</sub> are H, alkyl, alkoxy or halogen). The organopolysiloxane (d) includes modified organopolysiloxane obt. by (1) mixing (i) organopolysiloxane contg. epoxy or COOH and (ii) epoxy resin or phenol resin, and (2) heating the mixt.. The compsns. may contain other additives e.g. coupling agents, pigments or lubricating agents.

USE/ADVANTAGE - Semiconductors are sealed with the epoxy resin compsns.. The compsn. has higher Tg, lower elasticity and good flexibility.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: POLYPOXIDE RESIN COMPOSITION SEAL SEMICONDUCTOR CONTAIN TRI FUNCTION POLYPOXIDE RESIN POLYPHENOL RESIN CURE AGENT ACCELERATE ORGANO POLYSILOXANE

DERWENT-CLASS: A21 A26 U11

CPI-CODES: A05-A01B1; A05-C01B; A06-A00E; A07-A03B; A08-D01; A12-E04; A12-E07C;

EPI-CODES: U11-A07;

UNLINKED-DERWENT-REGISTRY-NUMBERS: 1408U; 1527U; 1694U; 5085U; 5087U; 5222U

POLYMER-MULTIPUNCH-CODES-AND-KEY-SERIALS:

Key Serials: 0005 0013 0035 0202 0204 0205 0207 0208 0218 0222 0224 0226 1277 1279 1282 3184 1306 1357 1361 1383 1587 1601 2002 2003 2020 2198 2208 2218 2224 2229 2302 2307 2315 2321 2493 2511 2628 3252 2667 2679 2738 3279 2210

Multipunch Codes: 014 02& 028 035 038 040 045 05 062 140 147 199 213 214 215 217 219 223 226 228 229 231 240 241 299 303 305 307 308 310 311 312 314 335 336

AN 1989:535622 CAPLUS  
DN 111:135622  
ED Entered STN: 14 Oct 1989  
TI Compositions containing trifunctional epoxides for potting of semiconductors  
IN Endo, Shigeru; Funakoshi, Tsutomu; Nakamura, Takahito; Miwa, Yoshiyuki  
PA Ube Industries, Ltd., Japan  
SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 6 pp.  
CODEN: JKXXAF

DT Patent

LA Japanese

IC ICM C08G059-32

ICS C09K003-10; H01L023-30

CC 38-3 (Plastics Fabrication and Uses)  
Section cross-reference(s): 76

FAN.CNT 1

	PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
PI	JP 01009214	A2	19890112	JP 1987-162986	19870630 <--
PRAI	JP 1987-162986		19870630		

CLASS

PATENT NO.	CLASS	PATENT FAMILY CLASSIFICATION CODES
JP 01009214	ICM	C08G059-32
	ICS	C09K003-10; H01L023-30
	IPCI	C08G0059-32 [ICM,4]; C08G0059-00 [ICM,4,C*]; C09K0003-10 [ICS,4]; H01L0023-30 [ICS,4]

OS MARPAT 111:135622

AB Potting compns. having high glass temperature and low flexural modulus contain trifunctional epoxy resins, phenolic resins, curing accelerators, inorg. fillers, and siloxanes containing  $\geq 1$  epoxide, CO<sub>2</sub>H, OH, CN, and/or polyoxyalkylene group. A mixture of a phenol novolak 75, SF 8421 25, and Ph<sub>3</sub>P 0.05 part was mixed (84 parts) with 1,1,3-tris(glycidyloxyphenyl)butane (I) 100, Ph<sub>3</sub>P 1.4, carnauba wax 3.8,  $\gamma$ -glycidoxypropyltrimethoxysilane 3.8, silica 545, Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 7.7, and C black 2.3 parts, hot kneaded, pulverized, molded 3 min at 175°, and cured 6 h at 175° to give a molding having bending flexural modulus 1130 kg/mm<sup>2</sup> and glass temperature 174°, vs. 1360 and 160, resp., with an o-cresol novolak epoxy resin instead of I.

ST epoxy resin trifunctional potting; potting trisglycidyloxyphenylbutane resin; heat resistance epoxy potting; flexibility epoxy resin potting; siloxane epoxy potting

IT Potting compositions

(epoxy resins, with high glass temperature and low flexural modulus)

IT Epoxy resins, uses and miscellaneous

RL: USES (Uses)

(potting compns., with high glass temperature and low flexural modulus)

IT 115325-37-6 122870-37-5

RL: USES (Uses)

(in potting compns., for high glass temperature and low flexural modulus)

## ④ 公開特許公報 (A)

昭64-9214

④ Int.Cl.<sup>4</sup>C 08 G 59/32  
C 09 K 3/10

H 01 L 23/30

識別記号

NKB

府内整理番号

6681-4J  
L-2115-4H  
B-2115-4H  
R-6835-5F

④ 公開 昭和64年(1989)1月12日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全6頁)

④ 発明の名称 半導体封止用エポキシ樹脂組成物

④ 特 願 昭62-162986

④ 出 願 昭62(1987)6月30日

④ 発明者	遠 藤 茂	大阪府枚方市中宮北町3番10号 宇部興産株式会社研究開発本部枚方研究所内
④ 発明者	船 越 勉	大阪府枚方市中宮北町3番10号 宇部興産株式会社研究開発本部枚方研究所内
④ 発明者	中 村 隆 人	大阪府枚方市中宮北町3番10号 宇部興産株式会社研究開発本部枚方研究所内
④ 発明者	三 輪 孔 之	大阪府枚方市中宮北町3番10号 宇部興産株式会社研究開発本部枚方研究所内
④ 出願人	宇部興産株式会社	山口県宇部市西本町1丁目12番32号
④ 代理人	弁理士 羽 島 修	

## 明細書

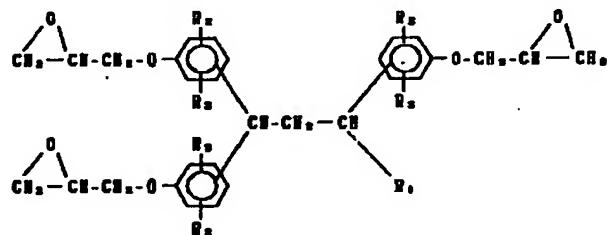
## 1. 発明の名称

半導体封止用エポキシ樹脂組成物

## 2. 特許請求の範囲

- (1) a) 三官能エポキシ樹脂、
- b) フェノール樹脂硬化剤、
- c) 硬化促進剤、
- d) 無機質充填剤、および
- e) 分子内に、エポキシ基、カルボキシル基、ヒドロキシル基、シアノ基およびポリオキシアルキレン基のうち1種または2種以上の基を有するオルガノポリシロキサンを含むことを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

(前記成分e)の三官能エポキシ樹脂が、次の式で示される化合物である、特許請求の範囲第4項記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。



(式中、R<sub>1</sub> はメチル基またはフェニル基を示し、R<sub>2</sub> およびR<sub>3</sub> は水素原子、アルキル基、アルコキシル基またはハロゲン原子からなる群より選ばれた同一もしくは異なる基を示す。)

切オルガノポリシロキサンが、エポキシ樹脂との反応物として含まれている、特許請求の範囲第4項記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

切オルガノポリシロキサンが、フェノール樹脂硬化剤との反応物として含まれている、特許請求の範囲第4項記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

## 3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、高いガラス転移点を有し、かつ低弾性で可挠性のある半導体封止用エポキシ樹脂組成物に関する。

## 〔従来の技術及びその問題点〕

従来から、ダイオード、トランジスタ、IC、LSI等の電子部品の封止方法として、エポキシ樹脂等を用いた樹脂封止がある。この樹脂封止は、ガラス、金属、セラミックを用いたハーメテックシール方法に比較して経済的に有利なため広く実用化されている。しかし、この樹脂封止は、トランジスター形成により素子を直接封止してしまうため、素子と樹脂との熱膨張率の差や、熱応力によって、素子の歪や破損を生じたり、ボンディング線が切断されるなどの問題があり、素子への应力を小さくすることが望まれている。特に近年、半導体素子の大型化、高集積化に伴ってその要求はますます強くなっている。

上記要求に対し、従来より、封止用樹脂の弾性率や熱膨張率を低下させる等の種々の試みがなされているが、何れの場合も満足し得るものではな

る低減は計られていない。

従って、本発明の目的は、高いガラス転移点を有し、かつ低弾性で可挠性のある半導体封止用エポキシ樹脂組成物を提供することにある。

## 〔問題点を解決するための手段〕

本発明は、上記目的を、

- a) 三官能エポキシ樹脂、
- b) フェノール樹脂硬化剤、
- c) 硬化促進剤、
- d) 無機質充填剤、および

e) 分子内に、エポキシ基、カルボキシル基、ヒドロキシル基、シアノ基およびポリオキシアルキレン基のうち1種または2種以上の基を有するオルガノポリシロキサン成分

を含むことを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物を提供することにより達成したものである。

以下、本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物について詳述する。

本発明の組成物に用いられるa)成分の三官能

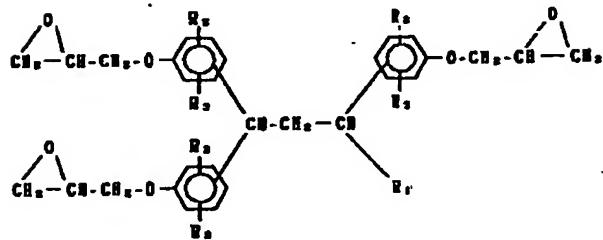
い。

例えば、低応力化の一つとして、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテルや長い側鎖を有するビスフェノールA型エポキシ樹脂などの可挠性付与剤を配合する方法が知られている。しかし、この方法の場合、低弾性率化効果は認められるものの、封止用樹脂のガラス転移点( $T_g$ )が急速に降下し、高溫時の電気特性が低下するという問題点を有している。

また、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂を不飽和二重結合を有するゴムで変性することが提案されているが、この場合も、弾性率は低下するが、ガラス転移点もかなり低下する(特開昭58-174416号公報および特開昭60-8315号公報参照)。

また、封止用樹脂の熱膨張係数を低下させる方法としては、熱膨張係数の小さい無機充填材を添加する方法が知られているが、この方法の場合、無機充填材の添加量を多くすると、熱膨張係数の低下と同時に弾性率が増加するので应力の十分な

エポキシ樹脂としては、次の式で示される化合物等が挙げられる。

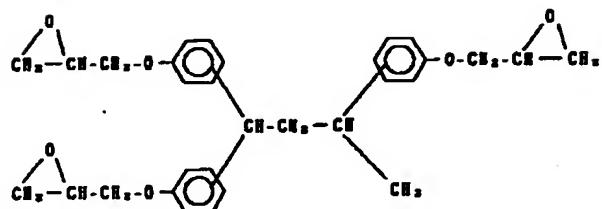


(式中、R<sub>1</sub>はメチル基またはフェニル基を示し、R<sub>2</sub>およびR<sub>3</sub>は水素原子、アルキル基、アルコキシル基またはハロゲン原子からなる群より選ばれた同一もしくは異なる基を示す。)

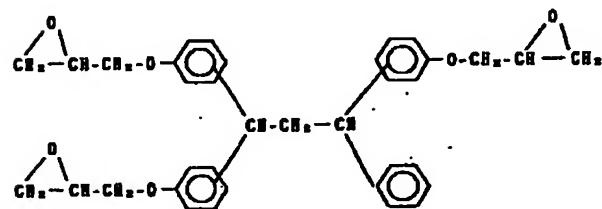
上式で示される好ましい三官能エポキシ樹脂としては、例えば、下記式(I)で示される1,1,3-トリス(グリシジルオキシフェニル)ブタノン、下記式(II)で示される1,1,3-トリス(グリシジルオキシフェニル)3-フェニルプロパン、下記式(III)で示される1,1,3-トリス(3-メチル-4-グリシジルオキシフェニル)ブタ

シ、下記式(N)で示される1,1,3-トリス(3,5-ジメチル-4-グリシジルオキシフェニル)ブタンなどが挙げられる。

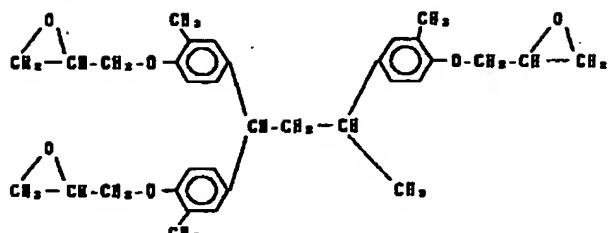
式(1)



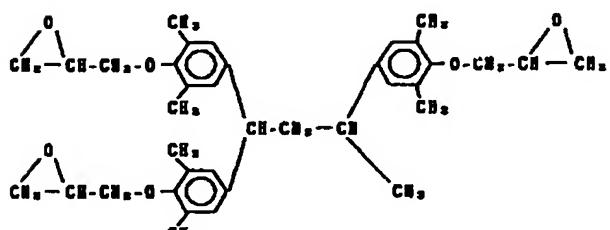
式(II)



式(III)



式(N)



また、三官能エポキシ樹脂には、o-クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂及びハロゲン化フェノールノボラック型エポキシ樹脂からなる群から選ばれた

1種または2種以上のエポキシ樹脂を併用することもできる。この場合の三官能エポキシ樹脂の使用量は、全エポキシ樹脂100重量部に対して10~100重量部、特に30~100重量部が好ましい。

また、本発明の組成物に用いられるb)成分のフェノール樹脂硬化剤としては、フェノール、o-クレゾール、m-クレゾール、p-クレゾール、エチルフェノール、キシレノール類、p-tert-ブチルフェノール、オクチルフェノールおよびノニルフェノールなどのアルキル置換フェノール類から選ばれた少なくとも1種類のフェノール化合物と、ホルムアルデヒドとを反応させた樹脂などが挙げられる。

また、本発明の組成物に用いられるc)成分の硬化促進剤としては、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾールおよび2-ウンデシルイミダゾールなどのイミダゾール類、2-(ジメチルアミノメチル)フェノール、2,4,6-トリス(ジ

メチルアミノメチル)フェノールおよびベンジルジメチルアミンなどの第3級アミン、トリフェニルホスフィン、トリブチルホスフィン、メチルジフェニルホスフィンおよびトリシクロヘキシルホスフィンなどの有機ホスフィン類、1,8-ジアザビシクロ(5,4,0)ウンデセン-7、1,8-ジアザビシクロ(7,2,0)ウンデセン-8、1,8-ジアザビシクロ(7,5,0)チトラデセン-8、1,5-ジアザビシクロ(4,3,0)ノネン-5および1,5-ジアザビシクロ(4,2,0)オクテン-5などのジアザビシクロアルケン類、並びに上記各化合物のフェノール型、焼成型およびアジピン酸型などが挙げられ、これらの化合物群から選ばれた1種または2種以上のものが使用される。

また、本発明の組成物に用いられるd)成分の無機質光吸收剤としては、滑石シリカ、結晶シリカ、強化マグネシウム、アルミナ、炭酸カルシウムなどが挙げられる。

また、本発明の組成物に用いられるe)成分の

オルガノポリシロキサンとしては、分子内にエポキシ基、カルボキシル基、ヒドロキシル基、シアノ基およびポリオキシアルキレン基のうち1種または2種以上の基を有するオルガノポリシロキサンが挙げられる。

上記オルガノポリシロキサンは、前記エポキシ樹脂および/または前記フェノール樹脂硬化剤に適量を加えて溶融した溶融混合物として配合することができ、また、上記オルガノポリシロキサンがエポキシ基を有する場合は、フェノール樹脂硬化剤との反応物（シリコーン変性フェノール樹脂）として、またカルボキシル基を有する場合は、エポキシ樹脂との反応物（シリコーン変性エポキシ樹脂）として配合することが好ましいが、そのまま配合しても良い。

本発明の組成物において、前記エポキシ樹脂と前記フェノール樹脂硬化剤との配合比率は、前記エポキシ樹脂中に含まれるエポキシ基1個当たり、前記フェノール樹脂硬化剤中に含まれるフェノール性水酸基が0.5～2.0個となるような比率であ

ング剤などのカップリング剤、カーボンなどの上うな着色剤、さらに臭素化フェノールノボラック型エポキシ樹脂、臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂などの阻燃剤、三酸化アンチモン、五酸化アンチモンなどの阻燃助剤を添加することもできる。

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、前述の成分a)～e)および必要に応じその他の添加成分を、ヘンシェルキキサーなどで混合し、混合物をロールまたはニーダーなどで70～110℃で混練することにより得ることができる。

#### （実施例）

以下に実施例で用いた変性物の合成例、実施例及び比較例を挙げ、本発明をさらに詳細に説明する。尚、合成例、実施例及び比較例で用いた材料は、下記の通りである。

#### a) エポキシ樹脂：

##### ・エポキシ樹脂（I）

前記式（I）で示される3官能性エポキシ樹脂（エポキシ当量220、軟化点72℃）

るのが好ましい。

また、前記硬化促進剤の配合量は、全組成物に対して0.1～1.0重量%が好ましい。

また、前記無機質充填剤の配合量は、全組成物に対して60～85重量%が好ましい。前記無機質充填剤の配合量が85重量%超では、組成物の流動性が低く、成形性が悪くなり、また60重量%未満では、攝影強度が大きくなる。

また、前記オルガノポリシロキサンの配合量は、前記エポキシ樹脂と前記フェノール樹脂硬化剤との合計100重量部に対して3～50重量部、特に5～40重量部が好ましい。前記オルガノポリシロキサンの配合量が3重量部未満では、弾性率の低下が少なく、また50重量部超では、ガラス転移温度、機械的強度および高温時電気特性の低下が大きい。

本発明の組成物には、前述のa)～e)の各成分の他に、必要に応じて、天然ワックス、合成ワックス、高級脂肪酸およびその金属塩などの難燃剤、シラン系カップリング剤やチタン系カップリ

#### ・エポキシ樹脂（II）

前記式（II）で示される3官能性エポキシ樹脂（エポキシ当量220、軟化点72℃）

#### ・エポキシ樹脂（III）

オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂（エポキシ当量197、軟化点73℃）

#### ・エポキシ樹脂（IV）

トリス（グリシジルオキシフェニル）メタン（エポキシ当量162）

#### ・エポキシ樹脂（V）

臭素化フェノールノボラック型エポキシ樹脂（エポキシ当量275、軟化点84℃）

#### b) フェノール樹脂硬化剤：

フェノールノボラック樹脂（水酸基当量108、軟化点95℃）

#### c) 硬化促進剤：トリフェニルホスフィン

#### d) 無機質充填剤：滑石シリカ

#### e) オルガノポリシロキサン：

##### ・シリコーンオイル（I）

エポキシポリエーテル変性シリコーンオイル

ル(トーレシリコーン社製SF8421)  
 ・シリコーンオイル(Ⅲ)  
 エポキシ変性シリコーンオイル(トーレシリコーン社製SF8411)  
 ・シリコーンオイル(Ⅱ)  
 エポキシ変性シリコーンオイル(トーレシリコーン社製BY16-839)  
 ・シリコーンオイル(Ⅳ)  
 カルボキシル変性シリコーンオイル(トーレシリコーン-SF8418)  
 ① 離型剤: カルナバワックス  
 ② カップリング剤:  
 a) テグリシドキシプロピルトリメトキシシラン  
 b) 離着剤: 三酸化アンチモン  
 ③ 着色剤: カーボンブラック  
 合成例1  
 【シリコーン変性フェノール樹脂の合成】  
 混拌機付きの4つロフラスコに、それぞれ、下記表-1に示した所定量の、シリコーンオイル、フェノール樹脂硬化剤及びトリフェニルホスフィ

ンを加え、空素気流中140℃で搅拌しながら3時間反応させて、シリコーン変性フェノール樹脂(変性物A~D)をそれぞれ得た。

## 合成例2

## 【シリコーン変性エポキシ樹脂の合成】

搅拌機付きの4つロフラスコに下記表-1に示した所定量の、シリコーンオイル、エポキシ樹脂及びトリフェニルホスフィンを加え、空素気流中140℃で搅拌しながら1.5時間反応させて、シリコーン変性エポキシ樹脂(変性物E)を得た。

## 実施例1~7及び比較例1~3

下記表-2に示す材料をそれぞれ混合し、混合物を加熱ロールにより混練、冷却後粉碎してエポキシ樹脂成形材料(エポキシ樹脂組成物)をそれぞれ得た。得られた成形材料それぞれを用いて、175℃×3分の成形条件で試験片を作成し、175℃×6時間の硬化を行った後、試験片それぞれの諸特性を評価した。その結果を下記表-2に示す。

表-1

変性物	合成例1				合成例2
	A	B	C	D	E
エポキシ樹脂(Ⅰ)					75
フェノール樹脂硬化剤	75	66	75	75	
シリコーンオイル(Ⅰ)	25	34			
シリコーンオイル(Ⅱ)			25		
シリコーンオイル(Ⅲ)				25	
シリコーンオイル(Ⅳ)					25
トゲリシド(Ⅱ)	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05

数字は重量部を示す。

(以下、余白)

表 一 2

No.	エポキシ樹脂					成 性 物					75J-6 粘度(cps) (25°C)	硬化 促進 剤	触媒 剤	カップ リング 剤	遮光 剤	遮光 剤	着色 剤	物 性			
	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	A	B	C	D	E							*1	*2	*3		
実 験 例	1	100				20	84					1.4	3.8	3.8	545	7.7	2.3	1130	1.6	174	
	2	92				20		90				1.4	3.8	3.8	545	7.7	2.3	1050	1.5	173	
	3	100				20			84			1.4	3.8	3.8	545	7.7	2.3	1130	1.7	174	
	4	100				20				84		1.4	3.8	3.8	545	7.7	2.3	1130	1.6	175	
	5					20				126		58	1.4	3.8	3.8	545	7.7	2.3	1120	1.9	179
	6		104			20	80					1.4	3.8	3.8	545	7.7	2.3	1280	1.7	167	
比 較 例	1			114		20					70	1.4	3.8	3.8	545	7.7	2.3	1560	1.9	164	
	2			100		20	84					1.4	3.8	3.8	545	7.7	2.3	1360	1.7	160	
	3				93	20	81					1.4	3.8	3.8	545	7.7	2.3	1330	1.9	170	

記合目は重量である。

\*1: 由ガ弾性率 (GPa/m<sup>2</sup>) 、 \*2: 絶縁率 (×10<sup>-9</sup>/°C) 、 \*3: ガラス転移点 (°C)

## 【発明の結果】

本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、  
高いガラス転移点を有し、かつ低弾性で可塑性の  
あるものである。

特許出願人

宇都興産株式会社

代理人弁理士

羽鳥 健

